A1

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

13. Oktober 1994 (13.10.94)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP94/00786

(22) Internationales Anmeldedatum:

14. März 1994 (14.03.94)

(30) Prioritätsdaten:

P 43 09 969.6

26. März 1993 (26.03.93)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen

(72) Erfinder: und

- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BAASNER, Bernd [DE/DE]; Wagnerstrasse 83, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). LIEB, Folker [DE/DE]; Alfred-Kubin-Strasse 1, D-51375 Leverkusen (DE). SANTEL, Hans-Joachim (DE/DE); Grünstrasse 9a, D-51371 Leverkusen (DE). DOLLINGER, Markus [DE/DE]; Burscheiderstrasse 154b, D-51381 Leverkusen (DE).
- (74) Anwalt: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, LK, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: SUBSTITUTED HETEROANNULATED IMIDAZOLES AND THEIR USE AS HERBICIDES

(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE, HETEROANELLIERTE IMIDAZOLE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE

(57) Abstract

New substituted heteroannulated imidazoles having general formula (I), in which R1, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> and A<sup>4</sup> have the meanings given in the description, are disclosed, as well as a process for preparing the same and their use as herbicides.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I), in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, A1, A2, A3 und A4 die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide. **(I)** 

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	GA	Gabon	MIR	Mauretanien
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GE	Georgien	NE	Niger
BE	Belgien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	NZ	Neusceland
BJ	Benin	Œ	Irland	PL	Poleg
BR	Brasilien	П	Italien	PT	Portugal
BY	Belarus	JP	Japan	RO	Rumänien
CA	Kanada	KE	Kenya	RU	Russische Föderstion
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	KZ	Kasachstan	SK	Slowakei
CM	Kamerun	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CN	China	LK	Sri Lanka	TD	Techad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Techechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dinemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
ES	Spanien	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
Ħ	Finnland	MIL.	Mali	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MN	Mongolei	VN	Vietnam

## SUBSTITUIERTE, HETEROANELLIERTE IMIDAZOLE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE

Die Erfindung betrifft neue substituierte, heteroanellierte Imidazole, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bekannt, daß bestimmte Benzimidazole insektizide Eigenschaften besitzen, jedoch ist über die Verwendung von heteroanellierten Imidazolen als Herbizide noch nichts bekannt geworden.

Es wurden nun neue substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel 10 (I),

$$\begin{array}{c|c}
A & A & A \\
\downarrow_{2} & & N \\
A & & N \\
CH-R^{1} \\
\downarrow_{2} \\
R
\end{array}$$
(I)

in welcher

20

R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,

R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyphosphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxycarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht,

- R<sup>3</sup> für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,
- 5 A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
  - CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und
- 10 CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen, und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt,

worin

X1, X2 und X3 jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, 15 Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes 20 Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X1, X2 oder X3 für Halogenalkyl Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, 25 für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl,

Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht,

gefunden.

Die Verbindungen der Formel (I) können gegebenenfalls in Abhängigkeit von der Art und Anzahl der Substituenten als geometrische und/oder optische Isomere bzw. Regioisomere oder deren Isomerengemische in unterschiedlicher Zusammensetzung, aber auch als Stellungsisomere zum Beispiel in den folgenden Variationen vorliegen:

oder zum Beispiel auch folgende Variationen infrage kommen können:

$$X^{2} \xrightarrow{N} N = X^{3} \longrightarrow X^{3} N = X^{3} \xrightarrow{N} N = X^{3} N = X^{3}$$

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substituierten, heteroanellierten 5 Imidazole der allgemeinen Formel (I),

$$\begin{array}{c|c}
A & A & \\
\downarrow_{2} & & \\
A & & \\
A & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
N & \\
CH-R^{1} \\
\downarrow_{2} \\
R
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
CH-R^{1} \\
R
\end{array}$$

in welcher

10

15

- R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
  - R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyl, Dialkoxyphosphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxycarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht,
  - R<sup>3</sup> für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl,

Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,

A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und

CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt.

worin

 $X^1$ ,  $X^2$  und  $X^3$  jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen. Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> oder X<sup>3</sup> für Halogenalkyl, Halogenalkoxy. Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht,

25

15

20

30

erhält, wenn man

a) substituierte 1H-heteroanellierte Imidazole der Formel (II),

$$\begin{array}{c|c}
A^{3} & A^{4} \\
\downarrow_{2} & N \\
A & A^{1} & H
\end{array}$$
(II)

in welcher

5 A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup>, A<sup>4</sup> und R<sup>3</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (III),

in welcher

M für eine geeignete Abgangsgruppe steht,

10 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten, heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) gute Wirksamkeit als Herbizide besitzen.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen neuen substituierten, heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) eine erhebliche herbizide Wirksamkeit gegenüber Problemunkräutern und gleichzeitig eine vergleichbar gute Verträglichkeit gegenüber wichtigen Kulturpflanzen.

10

15

20

25

30

Die erfindungsgemäßen substituierten, heteroanellierten Imidazole sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanovl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl,

R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten und jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw.

15

20

25

30

Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Arylbzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen. geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

10

30

- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Arylcarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Arylsubstituenten infrage kommen,
- R<sup>3</sup> für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkenyloxy, Alkenyloxy mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl, Alkenyl oder Alkinylteilen, wobei als Substituienten jeweils infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel steht, wobei als Aryl bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- 25 R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
  - Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils

10

15

20

gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil. Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl. Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- 25 CX<sup>1</sup>, CX<sup>2</sup>, CX<sup>3</sup> bei einem Stickstoffatom und
  - CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt und
- X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod,
  Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy,

10

15

20

Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

10

15

20

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> oder X<sup>3</sup> für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogen-alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

- 25 X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.
- 30 Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

10

15

20 -

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten, geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom, Iod steht,

für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlen-

15

20

25

30

stoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil. jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

10

- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Arylsubstituenten infrage kommen,
- für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylcarbonyloxy, mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6
  Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

10

15

20

R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

30

CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und

- CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt und
- 5 X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenal-10 kylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 15 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils 20 gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

10

15

20

25

30

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

10

15

20

25

30

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil wie Phenyl oder Naphthyl stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl. Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom steht,

10

20

25

30

 $\mathbb{R}^2$ für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkenyi, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstiuenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

15 R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxy-

30

carbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyloxy oder Phenylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.
- außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Phenylsubstituenten infrage kommen,
- für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis dreifach gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
  - geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstiuenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

10

15

20

25

R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamovl. Thiocarbamovl oder Sulfamovl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>3</sup> außerdem für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.
- A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- 30 CX<sup>1</sup>, CX<sup>2</sup>, CX<sup>3</sup> bei einem Stickstoffatom und

PCT/EP94/00786

25

30

- CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt, und
- X<sup>1</sup>. X<sup>2</sup>. X<sup>3</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Chlor, Brom, Cyano, 5 Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 10 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxy-15 alkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder 20 Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:
  - jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;
  - X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenylthio, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenyloxycarbonyl,

10

15

20

25

30

Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo stehen, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten ieweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Phenylsulfonyl oder Phenylazo, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen infrage kommen.

WO 94/22859 PCT/EP94/00786

Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen genannten Verbindungen die folgenden substituierten heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) genannt:

$$\begin{array}{c|c}
A & A & N \\
\downarrow_{2} & N & R \\
A & N & CH-R \\
\downarrow_{2} & R
\end{array}$$
(I)

Tabelle I

$$X^{1}$$
 $X^{1}$ 
 $X^{1$ 

R									
<b>X</b> 1	X2	X <sup>3</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>				
н	н	н	н	OEt	CF <sub>3</sub>				
H	Н	H	Н	OPr	CF <sub>3</sub>				
H	H	H <sub>.</sub>	H	OCH≡CH	CF <sub>3</sub>				
H	Н	H	Н	OiPr	CF <sub>3</sub>				
H	Н	H	H	OnBu	CF <sub>3</sub>				
H	H	·H	H	OiBu	CF <sub>3</sub>				
H	H	H	H	OtBu	CF <sub>3</sub>				
H	H	Н	H	Osec.Bu	CF <sub>3</sub>				
H	H	H	H	OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	CF <sub>3</sub>				
H	H	H	H	OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OEt	CF <sub>3</sub>				
H	H	H	H	N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	н	Н	Me N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	н	Н	Et N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	Н	Н	Pr N-COOEs	CF <sub>3</sub>				
H	Н	Н	н	N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	н	н	tBu N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	н	н	nPr N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
Н	н	Н	Н	iPr N-COOEt	CF <sub>3</sub>				
		I .	I .	1 4					

; . . ; . :

<b>X</b> 1	X2	Х3	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>
Н	н	Н	Н	O "C	CF <sub>3</sub>
Н	Н	Н	н	0 = C	CF <sub>3</sub>
Н	Вг	Н	н	·	
Br	н	Н	н		
H	Br	Н	Н		
H	Cl	,H	H		
Cl	H	Н	·H		
H	H	Cl	H		
F	н	н	Н	·	
H	F	H	H		
H	Н	F	H		
H	CF <sub>3</sub>	H	Н	·	
CF <sub>3</sub>	H	H	H		
H	H	CF <sub>3</sub>	Н		
H	OCF <sub>3</sub>	H	H		
H	SCF <sub>3</sub>	H	Н		
H	NO <sub>2</sub>	H	H		
H	CHF <sub>2</sub>	H	H		
H	OCHF <sub>2</sub>	H	H		
H	H	H	Н	$CH = CH_2$	CF <sub>3</sub>
H	H	H	н	C≡CH	CF <sub>3</sub>
H	H	H	Н	COCH <sub>3</sub>	CF <sub>3</sub>
H	H	H	Н	H <sub>3</sub> CCONH-	· CF <sub>3</sub>
H	Н	H	Н	(H <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CCONH-	CF <sub>3</sub>

Die gesamten Beispiele gelten auch für  $R^3 = CHF_2$ ,  $R^3 = C_2F_5$ ,  $R^3 = C_3F_7$  und zudem kann für jedes  $X^1$  bis  $X^3$ -Muster die  $R^2$  und  $R^3$  Variation wie in der Tabelle angegeben ist, durchgeführt werden.

Die in der vorstehenden Tabelle gegebenen Substituentenvariationen können auch für die anderen, isomeren Pyridine gegeben werden:

$$X^{1}$$
 $X^{1}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{1}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{3}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{1}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{3}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{3}$ 
 $X^{4}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{1}$ 
 $X^{2}$ 
 $X^{3}$ 
 $X^{4}$ 
 $X^{4$ 

10

Sinngemäß gilt diese Variation, auf  $X^1$  und  $X^2$  beschränkt, auch für die Pyrimidinoimidazole

$$X^{1} \xrightarrow{N} X^{N} \xrightarrow{N} R^{2}$$

$$X^{2} \xrightarrow{1} {1 \choose N} {1 \choose N}$$

$$X^{2} \xrightarrow{1} {1 \choose N} {2 \choose N}$$

5 und die Pyrazine

10 Verwendet man beispielsweise das Pyrimidinoimidazol (1) und Chlormethylethylester als Ausgangsverbindungen, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens durch das folgende Reaktionsschema darstellen:

3 
$$\longrightarrow$$
 CF<sub>3</sub> + 3 CICH<sub>2</sub>-O-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>  $\xrightarrow{\text{Base}}$  -HCI

(1)

 $\longrightarrow$  N CF<sub>3</sub> +  $\longrightarrow$  N CF<sub>3</sub> +  $\longrightarrow$  N CF<sub>3</sub>
 $\longrightarrow$  CH<sub>2</sub>OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>  $\xrightarrow{\text{CH}_2\text{OC}_2\text{H}_5}$   $\xrightarrow{\text{CH}_2\text{OC}_2\text{H}_5}$ 

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens als Ausgangsstoffe benötigten heteroanellierten Imidazole sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) stehen A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup>, A<sup>4</sup> und R<sup>3</sup>, vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

Die 1H-heteroanellierten Imidazole der Formel (II) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (GB 1 114 199; JP 62 294 683; J. Heterocyl. Chem. 18 (2), 303-7; EP 297 661; J. Med. Chem. 33 (8), 2231-9).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens weiterhin als Edukte erforderlichen Verbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

M steht für einen bei Alkylierungsmitteln üblichen Abgangsrest, vorzugsweise für Halogen, Arylsulfonsäureester, Aralkylsufonsäureester, Alkylsulfonsäureester, Alkylsulfonsäureester, Alkylsulfonsäureester, Tolylsulfonsäureester, Phenylsulfonsäureester, C<sub>1-8</sub>-Alkylcarbonyloxy, oder Benzoyl und insbesondere bevorzugt für Chlor, Brom, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfonsäureester, Phenylsulfonsäureester, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkylcarbonyloxy oder Benzoyl.

Die Verbindungen der Formel (III) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (vergl. z.B. DE 20 40 175; DE 21 19 518; Synthesis 1973, 703).

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kommen inerte organische Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform oder Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether, Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester, wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester oder Basen wie Pyridin oder organische Säuren, wie Ameisensäure oder Essigsäure.

- Das erfindungsgemäße Verfahren wird vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören beispielsweise Erdalkali- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithium-diethylamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat, Lithium-organische Verbindungen, wie n-Butyllithium sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, Di-isopropyl-ethylamin, Tetramethylguanidin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, Piperidin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diaza-
- In den Fällen, wo A in Formel (III) für eine Alkohol-, Alkanoyloxy oder Alkoxygruppe steht, kommen als Reaktionshilfsmittel auch organische oder anorganische Säuren, wie beispielsweise Schwefelsäure, Salzsäure, p-Toluolsulfonsäure, Perfluorbutansulfonsäure oder stark saure Ionenaustauscher infrage.

bicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

25

Das erfindungsgemäße Verfahren kann gegebenenfalls auch in einem Zweiphasensystem, wie beispielsweise Wasser/Toluol oder Wasser/Dichlormethan, gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Phasentransferkatalysators, durchgeführt werden. Als Beispiele für solche Katalysatoren seien genannt: Tetrabutylammoniumiodid, Tetrabutylammoniumbromid, Tetrabutylammoniumchlorid, Tributyl-methylphosphoniumbromid, Trimethyl-C<sub>13</sub>/C<sub>15</sub>-alkylammoniumchlorid, Trimethyl-C<sub>13</sub>/C<sub>15</sub>-alkylammoniumbromid, Dibenzyl-dimethyl-ammoniummethylsulfat, Dimethyl-C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-alkyl-benzylammoniumchlorid, Dimethyl-C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-alkyl-benzylammoniumbromid, Tetrabutylammoniumhydroxid, Triethylbenzylammoniumchlorid, Methyltrioctylammoniumchlorid, Trimethylbenzylammoniumchlorid, 15-Krone-5, 18-Krone-6 oder Tris-[2-(2-methoxyethoxy)-ethyl]-amin.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -70°C und +200°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0°C und 130°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird üblicherweise unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens setzt man pro Mol 1H20 heteroanelliertem Imidazol der Formel (II) im allgemeinen 1,0 bis 5,0 Mol,
vorzugsweise 1,0 bis 2,5 Mol Verbindung der Formel (III) und gegebenenfalls 0,01
bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 3,0 Mol Reaktionshilfsmittel ein.

In einer besonderen Durchführungsform ist es auch möglich, die 1H-heteroanellierten Imidazole der Formel (II) zunächst in einem vorgelagerten Reaktionsschritt mit Hilfe üblicher Silylierungsverfahren beispielsweise mit Hexamethyldisilazan oder Trimethylsilylchlorid, gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Katalysators, wie beispielsweise Schwefelsäure, Trifluoressigsäure, Ammoniumsulfat, Imidazol oder Saccharin bei Temperaturen zwischen -20°C und +50°C zu silylieren und die so erhältlichen heteroanellierten 1-Trimethylsilylimidazole in einer anschließenden zweiten Stufe mit Alkylierungsmitteln der Formel (II) gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren umzu-

setzen. In diesem Fall ist es von Vorteil, als Katalysator zur Alkylierungsreaktion Zinntetrachlorid zuzusetzen (vergl. z.B. Chem. Heterocycl. Comp. USSR 24, 514 [1988])

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach bekannten Verfahren (vergl. hierzu auch die Herstellungsbeispiele).

Die Reinigung der Endprodukte der Formel (I) erfolgt mit Hilfe üblicher Verfahren, beispielsweise durch Säulenchromatographie oder durch Umkristallisieren.

Die Charakterisierung erfolgt mit Hilfe des Schmelzpunktes oder bei nicht kristallisierenden Verbindungen - insbesondere bei Regioisomerengemischen - mit Hilfe der Protonen-Kernresonanzspektroskopie (<sup>1</sup>H-NMR).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, vorzugsweise Arthropoden und Nematoden, insbesondere Insekten und Spinnentieren, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. Oniscus asellus, Armadillidium vulgare, Porcellio scaber.

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. Blaniulus guttulatus

20 Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. Geophilus carpophagus, Scutigera spec.

Aus der Ordnung der Symphyla z.B. Scutigerella immaculata.

Aus der Ordnung der Thysanura z.B. Lepisma saccharina.

Aus der Ordnung der Collembola z.B. Onychiurus armatus.

Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. Blatta orientalis, Periplaneta americana, 25 Leucophaea maderae, Blattella germanica, Acheta domesticus, Gryllotalpa spp., Locusta migratoria migratorioides, Melanoplus differentialis, Schistocerca gregaria.

Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. Forficula auricularia. Aus der Ordnung der Isoptera z.B. Reticulitermes spp.. Aus der Ordnung der Anoplura z.B. Phylloxera vastatrix, Pemphigus spp., Pediculus humanus corporis, Haematopinus spp., Linognathus spp..

Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. Trichodectes spp., Damalinea spp.

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. Hercinothrips femoralis, Thrips tabaci.

Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. Eurygaster spp., Dysdercus intermedius, Piesma quadrata, Cimex lectularius, Rhodnius prolixus, Triatoma spp.

Aus der Ordnung der Homoptera z.B. Aleurodes brassicae, Bemisia tabaci, Trialeurodes vaporariorum, Aphis gossypii, Brevicoryne brassicae, Cryptomyzus ribis, Aphis fabae, Doralis pomi, Eriosoma lanigerum, Hyalopterus arundinis, Macrosiphum avenae, Myzus spp., Phorodon humuli, Rhopalosiphum padi, Empoasca spp., Euscelis bilobatus, Nephotettix cincticeps, Lecanium corni, Saissetia oleae, Laodelphax striatellus, Nilaparvata lugens, Aonidiella aurantii, Aspidiotus hederae, Pseudococcus spp. Psylla spp.

Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. Pectinophora gossypiella, Bupalus piniarius,
Cheimatobia brumata, Lithocolletis blancardella, Hyponomeuta padella, Plutella
maculipennis, Malacosoma neustria, Euproctis chrysorrhoea, Lymantria spp.
Bucculatrix thurberiella, Phyllocnistis citrella, Agrotis spp., Euxoa spp., Feltia spp.,
Earias insulana, Heliothis spp., Spodoptera exigua, Mamestra brassicae, Panolis
flammea, Prodenia litura, Spodoptera spp., Trichoplusia ni, Carpocapsa pomonella,
Pieris spp., Chilo spp., Pyrausta nubilalis, Ephestia kuehniella, Galleria mellonella,
Tineola bisselliella, Tinea pellionella, Hofmannophila pseudospretella, Cacoecia
podana, Capua reticulana, Choristoneura fumiferana, Clysia ambiguella, Homona
magnanima, Tortrix viridana.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. Anobium punctatum, Rhizopertha dominica,
Acanthoscelides obtectus, Acanthoscelides obtectus, Hylotrupes bajulus, Agelastica
alni, Leptinotarsa decemlineata, Phaedon cochleariae, Diabrotica spp., Psylliodes
chrysocephala, Epilachna varive stis, Atomaria spp., Oryzaephilus surinamensis,
Antho nomus spp., Sitophilus spp., Otiorrhynchus sulcatus, Cosmopolites sordidus,
Ceuthorrhynchus assimilis, Hypera postica, Dermestes spp., Trogoderma spp.,
Anthrenus spp., Attagenus spp., Lyctus spp., Meligethes aeneus, Ptinus spp., Niptus
hololeucus, Gibbium psylloides, Tribolium spp., Tenebrio molitor, Agriotes spp.,

Cono derus spp., Melolontha melolontha, Amphimallon solsti tialis, Costelytra zealandica.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. Diprion spp., Hoplocampa spp., Lasius spp., Monomorium pharaonis, Vespa spp.

Aus der Ordnung der Diptera z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Drosophila melanogaster, Musca spp., Fannia spp., Calliphora erythrocephala, Lucilia spp., Chrysomyia spp., Cuterebra spp., Gastrophilus spp., Hyppobosca spp., Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata,
Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp.. Aus der Ordnung der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans.

Aus der Ordnung der Acarina z.B. Acarus siro, Argas spp., Ornithodoros spp., Dermanyssus gallinae, Eriophyes ribis, Phyllocoptruta oleivora, Boophilus spp., Rhipicephalus spp., Amblyomma spp., Hyalomma spp., Ixodes spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Sarcoptes spp., Tarsonemus spp., Bryobia praetiosa, Panonychus

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zeichnen sich durch eine hohe insektizide und

spp., Tetranychus spp..

akarizide Wirksamkeit aus.

- 20 Sie lassen sich mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von pflanzenschädigenden Insekten, wie beispielsweise gegen die Larven des Meerettichblattkäfers (Phaedon cochleariae) oder gegen die Larven der grünen Reiszikade (Nephotettix cincticeps) gegen die Raupen der Kohlschabe Plutella maculipennis.
- Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können weiterhin als Defoliants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen,

wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

- Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea.
- Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.
- Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria,
   Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorg hum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus,
   Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.
  - Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.
- Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.
  - Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Zitrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von mono- und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen wie beispielsweise Weizen, Mais oder Soja einsetzen.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene, oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid oder Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quartz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nicht ionogene und anionische Emulgatoren, wie Poly-

oxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolygly-kolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Ligninsulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische, pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba oder Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxyfop-methyl und Quizalofopethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr,

Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß. Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

- Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen; Sprühen, Streuen.
- Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden.

Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 0,001 und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 0,005 und 5 kg pro Hektar.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können bei der Anwendung als Insektizide ebenfalls in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen. Zu den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, chlorierte Kohlenwasserstoffe, Phenylharnstoffe, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a.

- Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können bei der Anwendung als Insektizide ferner in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne daß der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muß.
- 10 Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gewichtsprozent liegen.

Die Anwendung geschieht bei der Anwendung als Insektizide in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

#### Herstellungsbeispiele

### Beispiel 1

Br 
$$CF_3$$
 +  $CF_3$  +  $CF_3$   $CI-CH_2-O-Et$   $CH_2CI_2/NEt_3$ 

A1 A2

Br  $CF_3$  +  $CF$ 

2,66 g (0,01 Mol) 2-Trifluormethyl-brom-pyridino-[1H]-imidazol (A1/A2) und
 1,75 ml (0,0125 Mol) Triethylamin werden in 100 ml Dichlormethan gelöst. Dazu tropft man 1,25 ml (0,0125 Mol Chlormethyl-methylether, erhitzt anschließend auf Rückflußtemperatur und rührt 16 Stunden lang bei Rückflußtemperatur nach. Zur Aufarbeitung wird die abgekühlte Reaktionsmischung dreimal mit je 30 ml Wasser gewaschen, über MgSO<sub>4</sub> getrocknet, im Vakuum eingeengt und der Rückstand durch
 10 Chromatografie an Kieselgel (Laufinittel: Dichlormethan) gereinigt.

Man erhält 2,40 g (74 % der Theorie) 1-Ethoxymethyl-2-trifluormethyl-brompyridinoimidazol als Regioisomerengemisch (B1/B2) im Verhältnis 60:40 (Fp.: 68°C).

<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>/Tetramethylsilan):  $\delta = 5,68$  (s, 2H); 5,85 (s, 2H) ppm (jeweils N-CH<sub>2</sub>-O-).

15 Durch Umkristallisation mit einem Ether/Petrolether-Gemisch lassen sich die Isomeren voneinander trennen.

Analog werden die in der nachfolgenden Tabelle aufgeführten Verbindungen erhalten.

Tabelle II

Beispiel Nr.	Al	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup> .	A <sup>4</sup>	Rl	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	physikali- sche Daten
· ·								
2	N	CH	СН	СН	Н	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CF <sub>3</sub>	Fp.: 92°C
3	СН	СН	СН	N	Н	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CF <sub>3</sub>	Fp.: 170°C
4	СН	N	СН	СН	Н	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.89 (s, 2H)
5	СН	СН	N	CH	Н	ОС <sub>2</sub> Н <sub>5</sub>	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.08 (s, 2H)
6	N	СН	CBr	СН	Н	COOE:	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.90 (s, 2H)
- 7	СН	CBr	СН	N	Н	COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.08 (s, 2H)

Tabelle II (Fortsetzung)

Beispiel Nr.	Al	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup>	A <sup>4</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	physikali- sche Daten
8	N	СН	CBr	СН	Н	N COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.90 (s, 2H)
9	СН	CBr	СН	N	н	N COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.10 (s, 2H)
10	N	CH	CBr	СН	Н	n-Propyl N COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.89 (s, 2H)
11	СН	СВг	СН	N	Н	n-Propyl COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.09 (s, 2H)
12	N	СН	CBr	СН	Н	N COOR	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.90 (s, 2H)
13	СН	CBr	СН	N	Н	N COOR	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.11 (s, 2H)
14	N	СН	СН	СН	Н	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.91 (s, 2H)
15	СН	СН	СН	N	Н	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.14 (s, 2H)

Tabelle II (Fortsetzung)

Beispiel Nr.	Al	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup>	A <sup>4</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	physikali- sche Daten
16	СН	N	СН	СН	Н	N COOE:	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.83 (s, 2H) Fp.:120°C
17	СН	СН	И	СН	Н	N COOE:	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.03 (s, 2H)
18	И	СН	СН	СН	н	CH=CH <sub>2</sub>	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.35 (d, J =3Hz, 2H)
19	N	СН	СН	СН	Н	сосн <sub>3</sub>	CF <sub>3</sub>	Fp.: 148- 150°C
20	N	СН	СН	СН	Н	CN	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.48 (s, 2H)
21	N	СН	СН	СН	Н	N COOE:	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.89 (s, 2H)
22	СН	СН	СН	N	Н	Et COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.12 (s, 2H)
23	N	СН	СН	СН	Н	N COOBs	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.94 (s, 2H)

Tabelle II (Fortsetzung)

Beispiel Nr.	A <sup>1</sup>	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup>	A <sup>4</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	physikali- sche Daten
		ı						
24	СН	СН	СН	N	Н	Me COOB:	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.12 (s, 2H)
25	N	СН	СН	СН	Н	N	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.88 (s, 2H) Fp.:119°C
26	СН	СН	СН	N	Н	N COOPE	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.02 (s, 2H)
27	N	СН	СН	СН	Н	N Et	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.93 (s, 2H)
28	СН	СН	СН	N	н	N Et	CHF <sub>2</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.14 (s, 2H) Fp.: 84°C
29	N	CCI	СН	СН	Н	N Et	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 5.88 (s, 2H)
30	СН	СН	CCI	N	Н	COOEt	CF <sub>3</sub>	<sup>1</sup> H-NMR*: 6.02 (s, 2H)
31	N   CHR <sub>4</sub> R₂	СН	СН	СН	Н	СИ	CF <sub>3</sub>	Fp.:184- 186°C

\* Die <sup>1</sup>H-NMR-Spektren wurden in Deuterochloroform (CDCl<sub>3</sub>) mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ-Wert in ppm; in allen Fällen wird die Verschiebung der N-CH<sub>2</sub>R<sup>1</sup>R<sup>2</sup>-Protonen angegeben.

### Beispiel A:

### Pre-emergence-Test

Lösungsmittel:

5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man einen Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalem Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffes pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

### 15 Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) 100% = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit bei vergleichbarer Nutzpflanzenselektivität zeigen in diesem Test die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele (1) und (6) zum Beispiel in Weizenkulturen bei Aufwandmengen von 1 000 g pro Hektar gegenüber Unkräutern wie Chenopodium (95-100 %), Galinsoga (95-100 %), Matricaria (90-95 %), Portulaca (100 %), Stellaria (100 %) und Viola (90-95 %), wobei Weizen nicht geschädigt wird (0 %).

# Tabelle III

WO 94/22859

# Pre-emergence-Test/Gewächshaus

Wirkstoff	Auf- wand- menge g/ha	Weizen	Cheno- podium	Galinsoga	Matricaria	Portulaca	Stellaria	Viola
Pr N CF <sub>3</sub> (1)	1000	0	100	100	95	100	100	95
Br N CF <sub>3</sub> (6)  CH <sub>2</sub> H <sub>2</sub> COC,H <sub>3</sub> OC,H <sub>5</sub>	1000	0	95	95	90	100	100	90

- 49 -

### Beipiel B:

#### Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gew.

5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 bis 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

#### Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

15 100% = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit ebenso wie in der Nutzpflanzenselektivität zeigen in diesem Test die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele (1), (6) und (12) zum Beispiel in Weizenkulturen bei Aufwandmengen von 250 g pro Hektar gegenüber Unkräutern wie Datura (90-100 %), Helianthus (90-100 %), Portulaca (90-100 %), Sinapis (100 %) und Solanum (80-100 %), wobei Weizen nicht geschädigt wird (0 %).

# Tabelle IV

# Post-emergence-Test/Gewächshaus

Wirkstoff	Auf- wand- menge g/ha	Weizen	Datura	Helianthus	Portulaca	Sinapis	Solanum
Pr N CF <sub>3</sub> (1)	250	0	90	90	90	100	80
Pr N CF, (12)	250	0	100	100	100	100	100
Br N CF <sub>3</sub> (6)	250	0	100	100	100	100	100
HC C OC,H,							

WO 94/22859 PCT/EP94/00786

- 51 -

## Beipiel C:

### Phaedon-Larven-Test

Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Kohlblätter (Brassica oleracea) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Meerrettichblattkäfer-Larven (Phaedon cochleariae) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Käfer-Larven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Käfer-Larven abgetötet wurden.

15 Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels (1) einen Abtötungsgrad von 100 % nach 7 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

- 52 -

# Tabelle V

Phaedon-Larven-Test (pflanzenschädigende Insekten)

Wirkstoffe	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungs- grad in % nach 7 <sup>d</sup>
$H_3C^{\circ}O^{\circ}N$ $H_3C$	0,1	100

## Beipiel D:

#### Plutella-Test

Lösungsmittel:

5 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Kohlblätter (Brassica oleracea) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen der Kohlschabe (Plutella maculipennis) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Raupen abgetötet wurden.

15 Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels (1) einen Abtötungsgrad von 100 % nach 7 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

# Tabelle VI

Plutella-Test (pflanzenschädigende Insekten)

Wirkstoffe Wirkstoffkon- Abtötungszentration grad in % in % nach 7d

WO 94/22859 PCT/EP94/00786

- 55 -

## Beipiel E:

### Nephotettix-Test

Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Reiskeimlinge (Oryza sativa) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Larven der Grünen Reiszikade (Nephotettix cincticeps) besetzt, solange die Keimlinge noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Zikaden abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Zikaden abgetötet wurden.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1) und (10) Abtötungsgrade bis 100 % nach 6 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

# Tabelle VII

Nephotettix-Test	
(pflanzenschädigende Insekten)	)

Wirkstoffe	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungs- grad in % nach 6 <sup>d</sup>
$H_3C^{\circ}O^{\circ}N$ $H_3C$	0,1	100
$F_3C$ $N$	0,1	100

#### Patentansprüche

1. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I)

$$A = \begin{bmatrix} A & A & A \\ A & A & A \\ A & A & A \end{bmatrix}$$

$$CH - R$$

$$CH - R$$

$$R$$

in welcher

- 5 R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
  - R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyphosphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonyloxy steht,
- 15 R<sup>3</sup> für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkinyloxy, Dialkoxyphosphonyl, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,
- 20 A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und

CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt,

#### 5 worin

10

15

20

- X1 X2 und X3 ieweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano. Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl. Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> oder X<sup>3</sup> für Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht.
- 2. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
- 25 R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

10

15

Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxvalkvlen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl,

20

 $R^2$ 

für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten und jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

25

Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

30

10

15

20

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

8 oder verzweigtes Alkyl mit bis geradkettiges Formyl, Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamovi. Cycloalkyl. Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenyloxycarbonyi, Alkvlthio-Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- 25 R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- 30 R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxy-

carbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Arylsubstituenten infrage kommen,

5

 $\mathbb{R}^3$ 

für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkenyloxy mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl, Alkenyl oder Alkinylteilen, wobei als Substituienten jeweils infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

15

10

R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

20

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten

25

30

10

25

30

Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.
- 15 A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
  - CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und
- 20 CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>,
  A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich
  monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt und
  - X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich

10

15

20

25

. 30

oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> oder X<sup>3</sup> für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogen-alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich

10

15

30

oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

- X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.
  - Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
    - R<sup>1</sup> für Wasserstoff, oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten, geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls

10

15

20

25

30

einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom, Iod steht,

R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlen-

stoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkvlthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Aryl-

10

5

15

20

25

30

PCT/EP94/00786

5

10

15

20

25

30

teil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Arylsubstituenten infrage kommen,
- $\mathbb{R}^3$ für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio. Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenvloxy. Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl. Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4

Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit ieweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandivlcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandivlteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arvlalkyl. Arvlalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

R<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

10

5

15

20

25

30

15

20

25

30

- A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und däbei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- 5 CX<sup>1</sup>, CX<sup>2</sup>, CX<sup>3</sup> bei einem Stickstoffatom und
  - CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R<sup>3</sup>) vorliegt und
  - X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlênstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach. gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen. wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

5

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

10

geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogen-

15

atomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> für jeweils

20

Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxy-

25

Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil

carbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder

oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als

Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

30

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4

PCT/EP94/00786

Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen:

5

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Arylcarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil wie Phenyl oder Naphthyl stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

10

4. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

15

R¹ für Wasserstoff oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

20

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halo-

25

30

genatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom steht,

10

15

 $\mathbb{R}^2$ 

5

für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

20

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstiuenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

25

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

30

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder

10

15

20

25

verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenyl-Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyloxy oder Phenylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen.

R<sup>2</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten Phenylsubstituenten infrage kommen,

30 R<sup>3</sup> für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis dreifach gleich oder verschieden

durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

10

5

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstiuenten die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

15

 $\mathbb{R}^3$ 

außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

20

25

30

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach

10

20

25

30

oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,

- R<sup>3</sup> außerdem für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen,
- A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- 15 CX<sup>1</sup>, CX<sup>2</sup>, CX<sup>3</sup> bei einem Stickstoffatom und
  - CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert vorliegt und
  - X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes

10

15

Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo stehen, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes

20

25

30

10

15

20

Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen;

- X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyl oder Phenylazo, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R<sup>1</sup> genannten infrage kommen infrage kommen.
- 5. Verfahren zur Herstellung neuer, substituierter, anellierter Imidazole der allgemeinen Formel (I)

$$\begin{array}{c|c}
A & & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & & \\
& & &$$

25 in welcher

10

25

- R! für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
- R<sup>2</sup> für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyphosphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxycarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonyloxy steht,
- R<sup>3</sup> für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkinyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,
- 15 A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> und A<sup>4</sup> für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
  - CX1, CX2, CX3 bei einem Stickstoffatom und
- 20 CX<sup>1</sup> und CX<sup>2</sup> bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup> oder A<sup>4</sup> für N-CHR<sup>1</sup>R<sup>2</sup> stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert vorliegt,

worin

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> und X<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-

10

carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy, Arylsulfonyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyl, stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> oder X<sup>3</sup> für Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht,

dadurch gekennzeichnet, daß man

1H-substituierte heteroanellierte Imidazole der Formel (II),

15

in welcher

A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup>, A<sup>3</sup>, A<sup>4</sup> und R<sup>3</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (III),

20 in welcher

M für eine geeignete Abgangsgruppe steht,

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umsetzt.

- 6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten, heteroanellierten Imidazol der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5.
- 7. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 auf Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
  - 8. Verwendung von substituierten, heteroanellierten Imidazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
- Verfahren zur Herstellung von herbiziden und insektiziden Mitteln, dadurch
   gekennzeichnet, daß man substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.
- 10. Verwendung von substituierten heteroanellierten Imidazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 zur Bekämpfung von tierischen 20 Schädlingen.

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
1PC 5 C07D471/04 C07D487/04 A01N43/90 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 5 CO7D Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Relevant to claim No. Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages 1-10 GB,A,1 165 138 (FISONS PEST CONTROL LTD) A 24 September 1969 \*page 3-4: claims\* 1-10 GB,A,1 186 504 (FISONS PEST CONTROL) 2 A April 1970 \*page 10-14\* 1-10 GB,A,1 143 082 (FISONS PEST CONTROL) 19 February 1969 \*page 7-10: claims\* 1-10 A CH, A, 511 873 (FISONS LIMITED) 31 August 1971 \*see the whole document\* -/--X Patent family members are listed in annex. X Further documents are listed in the continuation of box C. Special categories of cated documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance cited to understand the principle or theory underlying the invention "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to filing date document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled other means in the art. document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of mailing of the international search report Date of the actual completion of the international search 18. D7. 94 7 July 1994 Authorized officer Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL · 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Luyten, H Fax: (+31-70) 340-3016

'1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internatir 'Application No
PCT/EP 94/00786

		CT/EP 94/00/86			
C.(Continue Category *	stion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages				
- Lungur y	Chauti of accurring with interesting, where appropriate, or the receasing passages	Kitevali w cialii 147.			
1	FR,A,1 592 512 (FISONS PEST CONTROL LTD) 19 May 1970 *page 10-13*	1-10			
		·			
	·				

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

I nation on patent family members

Internation 1 Application No
PCT/EP 94/00786

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date	
GB-A-1165138	24-09-69	BE-A-	697714	27-10-67	
		CH-A-	464941		
		DE-A-	1670863	11-03-71	
		FR-A-	1522661		
		LU-A-	53533	27-10-67	
		NL-A-	6705871	06-11-67	
		US-A-	3449352	10-06-69	
GB-A-1186504	02-04-70	BE-A-	704877	09-04-68	
		CH-A-	486842	15-03-70	
		DE-A-	1670940	25-02-71	
		FR-A-	1540740		
		LU-A-	54631	07-05-68	
		NL-A-	6713923	16-04-68	
		0A-A-	2712	15-12-70	
GB-A-1143082		BE-A-	679235	07-10-66	
		CH-A-	456243		
		DE-A-	1670689	29-10 <del>-</del> 70	
		DE-A-	1670750	04-03-71	
		FR-A-	1475588	•	
		NL-A-	6605131	17-10-66	
		OA-A-	2227	05-05-70	
	·	US-A-	3561948	09-02-71	
CH-A-511873	31-08-71	NL-A-	6917115	26-05-70	
FR-A-1592512	19-05-70	NONE			

Internatio 'as Aktenzeichen PCT/EP 94/00786 A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 5 C07D471/04 C07D487/04 A01 A01N43/90 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK **B. RECHERCHIERTE GEBIETE** Recherchierter Mindestprüßtoff (Klassilikationssystem und Klassilikationssymbole) IPK 5 CO7D Recherchierte aber nicht zum Mindestprüstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete sallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Betr. Anspruch Nr. Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile A GB, A, 1 165 138 (FISONS PEST CONTROL LTD) 1-10 24. September 1969 \*Seite 3-4: Ansprüche\* GB,A,1 186 504 (FISONS PEST CONTROL) 2. 1-10 April 1970 \*Seite 10-14\*

> Februar 1969 \*Seite 7-10: Ansprüche\* CH, A, 511 873 (FISONS LIMITED) 31. August

GB, A, 1 143 082 (FISONS PEST CONTROL) 19.

1971 \*Insgesamt\*

A

1

X	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entrehmen
تنا	entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweiselhaft er-schennen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie
- 'O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung,
- eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

1-10

1-10

- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- '&' Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18.07.94

7. Juli 1994

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2

NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tr. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Luyten, H

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internation in Aktenzeichen
PCT/Er 94/00786

		1/Er 94/00/86
(Fortsetzu Lategorie*	ng) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommende	n Teile Betr. Anspruch Nr
\	FR,A,1 592 512 (FISONS PEST CONTROL LTD)	1-10
	19. Mai 1970 *Seite 10-13*	
		·
	·	
	-	

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichunge e zur seiben Patentfamilie gehören

Internation des Aktenzeichen PCT/Lr 94/00786

Im Recherchenbericht geführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(e Pauntfar		Datum der Veröffentlichung
GB-A-1165138	24-09-69	BE-A-	697714	27-10-69
		CH-A-	464941	
		DE-A-	1670863	11-03-71
		FR-A-	1522661	
		LU-A-	53533	27-10-67
		NL-A-	6705871	06-11-67
		US-A-	3449352	10-06-69
GB-A-1186504	02-04-70	BE-A-	704877	09-04-68
ab // 110000 /	<b>42 4</b>	CH-A-	486842	15-03-70
		DE-A-	1670940	25-02-71
		FR-A-	1540740	
		LU-A-	54631	07-05-68
		NL-A-	6713923	16-04-68
		0A-A-	2712	15-12-70
GB-A-1143082		BE-A-	679235	07-10-66
GD // 114300L		CH-A-	456243	
		DE-A-	1670689	29-10-70
		DE-A-	1670750	04-03-71
	•	FR-A-	1475588	
		NL-A-	6605131	17-10-66
		0A-A-	2227	05-05-70
		US-A-	3561948	09-02-71
CH-A-511873	31-08-71	NL-A-	6917115	26-05-70
FR-A-1592512	19-05-70	KEINE		